

ДИФФУЗИЯ МАКРОЧАСТИЦ И КРИТЕРИИ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ ДЛЯ ПЫЛЕВЫХ СТРУКТУР В СЛАБОИОНИЗИРОВАННОЙ ПЛАЗМЕ

О. С. Ваулина*

Институт теплофизики экстремальных состояний Российской академии наук
127412, Москва, Россия

Поступила в редакцию 29 июня 2001 г.

Исследовалась динамика заряженных макрочастиц в условиях, близких к условиям экспериментов в лабораторной слабоионизированной пылевой плазме газовых разрядов. Рассмотрены существующие и предложены новые феноменологические критерии фазовых переходов для пылевых структур в такой плазме. Определены параметры, отвечающие за порядок и масштабирование динамических процессов в диссипативных системах Юкавы. Получено соотношение для коэффициента диффузии D макрочастиц в сильно коррелированных жидкостных структурах.

PACS: 52.25.Ub, 52.25.Zb, 82.70.Db

1. ВВЕДЕНИЕ

Пылевая плазма представляет собой частично ионизированный газ, содержащий частицы конденсированного вещества (пыль) микронных размеров. Пылевые частицы в плазме могут приобретать электрические заряды и взаимодействовать между собой. Совместное действие сил межчастичного взаимодействия и процессов диссипации может приводить как к формированию стационарных пылевых структур (подобных жидкости или твердому телу), так и к сложным колебательным или хаотическим режимам [1–10].

Принято считать, что пылевые частицы в слабоионизированной плазме взаимодействуют друг с другом посредством заэкранированного кулоновского потенциала (потенциала Юкавы)

$$\phi_D = \frac{eZ}{l} \exp\left(-\frac{l}{\lambda}\right), \quad (1)$$

где eZ — заряд пылевых частиц, λ — длина экранировки, а l — межчастичное расстояние. Свойства неидеальных систем Юкавы активно исследуются с помощью численного моделирования [9–22]. Неидеальность пылевой плазмы обычно характеризуют

параметром Γ , равным отношению потенциальной энергии кулоновского взаимодействия между соседними частицами к их кинетической температуре T :

$$\frac{(eZ)^2 n^{1/3}}{T}$$

(здесь n — концентрация пыли, T измеряется в энергетических единицах). Численные расчеты показывают, что при $\Gamma > 1$ в кулоновской системе частиц появляется ближний порядок, а величина критического параметра неидеальности $\Gamma = \Gamma_c$ на линии кристаллизации близка к 106 [16, 19–21]. Предположение экранированного взаимодействия (1) приводит к росту параметра Γ_c на линии кристаллизации пылевых систем. Фазовая диаграмма для систем Юкавы, полученная путем обобщения результатов численного моделирования [11–18], приведена на рис. 1. Результаты моделирования показывают, что фазовые переходы в системах Юкавы определяются двумя безразмерными параметрами, Γ и $\kappa = n^{-1/3}/\lambda$. Однако до настоящего времени зависимость $f(\Gamma, \kappa)$, связывающая эти параметры с величиной $\Gamma_c = f(\Gamma, \kappa)$, не была получена ни для фазовых переходов жидкость–кристалл, ни для перехода между объемно-центрированной кубической (bcc) решеткой и гранцентрированной (fcc) структурой. Авторы ряда публикаций ограничиваются

*E-mail: idustpl@redline.ru

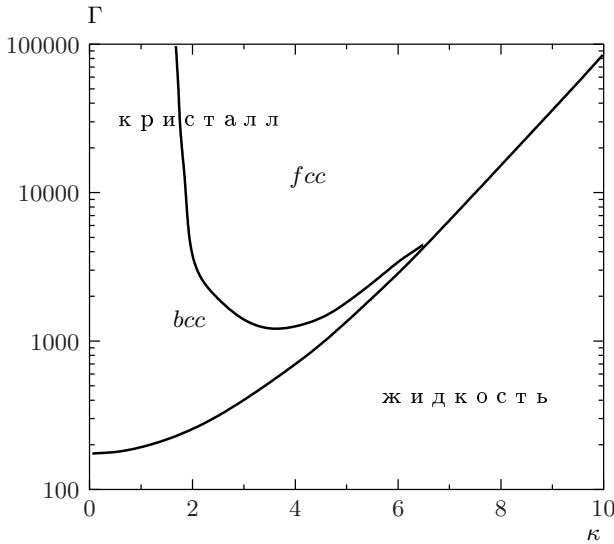


Рис. 1. Зависимости кулоновского параметра Γ на линиях фазовых переходов, построенные по результатам различных вычислений [1–4]

введением линейных аппроксимаций данных численного моделирования на различных участках фазовой диаграммы [13, 15]. Такие аппроксимации являются следствием наилучшей математической подгонки расчетных точек линейной функцией и не имеют физического обоснования. Наиболее успешная из работ [12] предлагает в качестве критерия для плавления *bcc*-решетки условие постоянства нормированной величины параметра неидеальности

$$\Gamma^* = (1 + \kappa + \kappa^2/2) \exp(-\kappa)\Gamma$$

($\Gamma_c^* \approx 106$). В работе [18] показано, что нормированная величина Γ_c^* практически не зависит от вязкости окружающего газа (коэффициента трения пылевых частиц ν_{fr}). Данное обстоятельство является существенным, поскольку в лабораторных плазменно-пылевых системах макроскопические частицы находятся в вязкой среде, где диссипация, обусловленная столкновениями с атомами или молекулами газа, играет значительную роль.

Диффузия макрочастиц является основным транспортным процессом массопереноса, который определяет энергетические потери (диссипацию) в пылевых системах и их динамические характеристики, такие как фазовое состояние, условия распространения волн и формирования пылевых неустойчивостей. Применение гидродинамических подходов позволяет получить успешное описание диффузии макрочастиц только в случае взаимодействий ближнего порядка. Когда силы межчастич-

ного взаимодействия не столь малы, как в газах, построение корректного кинетического уравнения терпит неудачу. Теория диффузии в молекулярных жидкостях развивалась в двух направлениях, одно из которых (более фундаментальное) опирается на общие положения статистической физики. Другой подход (теория «скачков») основан на аналогиях между жидкостью и твердым телом и дает для коэффициента диффузии молекул [23] следующее выражение:

$$D_M = \frac{d^2}{6\tau_0} \exp\left(-\frac{W}{T}\right), \quad (2)$$

где d — среднее расстояние между частицами, τ_0 — характерное время, определяющее частоту ν_0 переходов частицы из одного «оседлого» состояния в другое, а W — энергетический барьер, преодолеваемый частицей при этих переходах. Экспоненциальная зависимость D_M от температуры T в молекулярных жидкостях подтверждается экспериментально. Аналогичная температурная зависимость для коэффициента D самодиффузии макрочастиц была найдена в расчетах для диссипативных систем Юкавы [18]. Экспериментальная проверка данного результата сильно затрудняется тем фактом, что изменение любого из параметров плазменно-пылевой системы приводит к самосогласованному изменению остальных параметров, определяющих динамику частиц. Решением данной проблемы является определение простых функциональных зависимостей или аппроксимаций для коэффициентов самодиффузии макрочастиц в системах Юкавы, поиск которых является объектом интенсивных исследований [22–28]. Значение коэффициентов диффузии для диссипативных систем макрочастиц, взаимодействующих с экранированным потенциалом (1), представляет интерес не только с точки зрения определения динамических характеристик пылевой плазмы, но для анализа различных кинетических процессов в молекулярной биологии, медицине, химии полимеров и т. д. [22–28]. Различные аппроксимации, предлагаемые в настоящее время для коэффициентов самодиффузии макрочастиц в системах Юкавы основаны либо на вириальных разложениях для различных термодинамических функций, например, эффективной вязкости η в соотношении Эйнштейна $D_0 = \eta T$ [25–27], либо на аналогиях с критическими явлениями в газах [22, 24]. На основании этого при определенных условиях величина D может быть представлена либо суммой первых членов разложения как

$$D_0(1 + \zeta_0),$$

либо как степенная функция вида

$$\zeta_1 + \zeta_2(T/T_c - 1)^\psi,$$

где T_c — температура в точке плавления, а параметры ζ_0 , ζ_1 , ζ_2 и ψ определяются для конкретных условий (n , eZ , κ , ν_{fr}) в результате измерений или путем численного моделирования.

В данной работе исследовались критерии различных фазовых переходов и процессы диффузии взаимодействующих макрочастиц в диссипативных системах Юкавы с параметрами, близкими к условиям экспериментов в лабораторной слабоионизированной пылевой плазме газовых разрядов.

2. МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИНАМИКИ МАКРОЧАСТИЦ

Корректное моделирование движения пылевых частиц в слабоионизированной плазме требует применения метода броуновской динамики, который основан на решении системы обыкновенных дифференциальных уравнений с силой Ланжевена \mathbf{F}_{Br} , учитывающей случайные толчки окружающих молекул газа:

$$m_p \frac{d^2 \mathbf{l}_k}{dt^2} = \sum_j F_{int}(l) |_{l=|\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j|} \frac{\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j}{|\mathbf{l}_k - \mathbf{l}_j|} - m_p \nu_{fr} \frac{d\mathbf{l}_k}{dt} + \mathbf{F}_{Br}, \quad (3)$$

где m_p — масса частицы, а величина

$$F_{int}(l) = -eZ \frac{\partial \phi_D}{\partial l}$$

описывает парное межчастичное взаимодействие в системе. Для анализа динамики макрочастиц трехмерные уравнения движения (3) решались при периодических граничных условиях. Полное число частиц в моделируемой системе составляло $N_p = 125 \times 27$, где 125 — число независимых частиц, а 27 — число счетных ячеек для трехмерной задачи (3). Потенциал взаимодействия обрезался на расстояниях больших $4d$, где $d = n^{-1/3}$ — среднее межчастичное расстояние. Шаг по времени выбирался равным

$$\Delta t = \min(1/\nu_{fr}, 1/\omega^*)/20,$$

где

$$\omega^* = eZ(n/m_p)^{1/2} (1 + \kappa + \kappa^2/2)^{1/2} \exp(-\kappa/2)$$

— нормированная пылевая частота. Полное время счета изменялось от $2000/\nu_{fr}$ для $\nu_{fr} < \omega^*$ до

$2000\nu_{fr}/\omega^{*2}$ для $\nu_{fr} > \omega^*$ и составляло от $2 \cdot 10^5 \Delta t$ до $2 \cdot 10^6 \Delta t$ для различных параметров системы. Более подробное описание алгоритма численного эксперимента можно найти в работе [18].

В качестве величины, определяющей динамическое поведение пылевой системы, был рассмотрен коэффициент самодиффузии макрочастиц

$$D = \lim_{t \rightarrow \infty} D(t) = \frac{\langle (\mathbf{l}(t) - \mathbf{l}(0))^2 \rangle_N / t}{6t}, \quad (4)$$

где $\mathbf{l}(t)$ — смещение отдельной частицы, а $\langle \langle \rangle \rangle$ — усреднение по ансамблю (N) и по времени (t). Коэффициенты диффузии D пылевых частиц были найдены для различных давлений буферного газа (ν_{fr}), характерных пылевых частот ω^* , температур пыли T и длины экранирования λ ($\kappa = 2.4, 4.8$). Выбор длины экранирования для проведения расчетов определялся условием, необходимым для корректного моделирования динамики систем Юкавы — размер счетной ячейки $L \gg \lambda$ [11]. В наших расчетах

$$L \approx 5n^{-1/3} > 12 - 24\lambda.$$

Соотношение между межчастичным взаимодействием и диссипацией в системе задавалось параметром

$$\xi = \frac{\omega^*}{\nu_{fr}} = \frac{eZ(n/m_p)^{1/2} (1 + \kappa + \kappa^2/2)^{1/2} \exp(-\kappa/2)}{\nu_{fr}}. \quad (5)$$

Значения данного параметра были выбраны исходя из анализа условий экспериментов в газоразрядной плазме [1–10]. Для данных условий частота трения может быть записана в свободномолекулярном приближении [29]

$$\nu_{fr} [\text{с}] \approx C_V P [\text{Торр}] / (\rho [\text{г} \cdot \text{см}^{-3}] r [\text{мкм}]),$$

где r — радиус частицы, ρ — плотность материала, P — давление, а C_V — некоторый параметр, определяемый нейтралами буферного газа; так, для аргона $C_V \approx 840$, а для неона $C_V \approx 600$. Равновесный заряд пылевых частиц можно представить в виде [30]

$$Z \approx C_z r [\text{мкм}] T_e [\text{эВ}],$$

где T_e — температура электронов, а $C_z \approx 2000$ для большинства экспериментов в инертных газах. Тогда для некоторых усредненных параметров ($\rho \approx 4 \text{ г} \cdot \text{см}^{-3}$, $T_e \approx 1.5 \text{ эВ}$, $C_V \approx 700$, $k \approx 2$), можно получить следующую оценку для величины, определяемой уравнением (5):

$$\xi \approx 10^{-3} (n [\text{см}^{-3}] / r [\text{мкм}])^{1/2} (P [\text{Торр}])^{-1}. \quad (6)$$

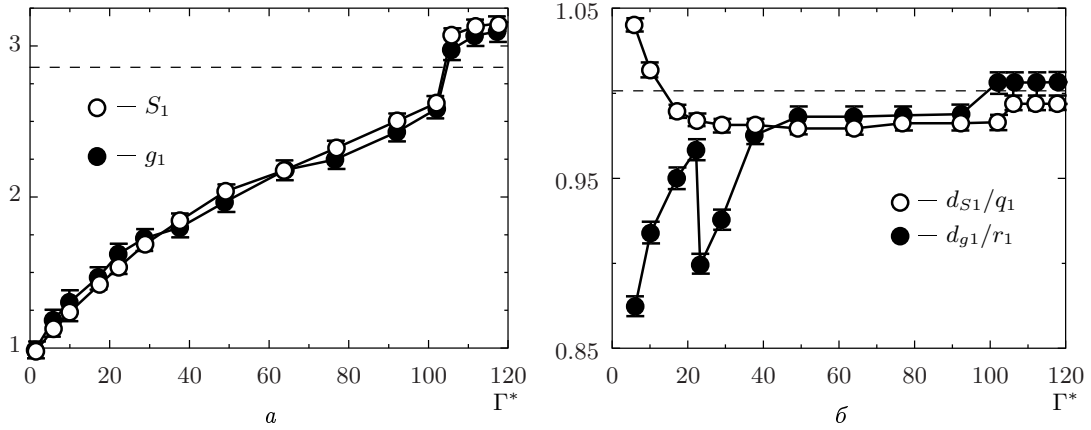


Рис. 2. Зависимости первых максимумов структурного фактора S_1 и парной корреляционной функции g_1 (а), а также их относительного положения d_{S_1}/q_1 и d_{g_1}/r_1 (б) от Γ^* (указаны интервалы абсолютных отклонений величин для различных случаев расчета: $\xi = 0.166; 0.5; \kappa = 2.4; 4,8$)

Отсюда для частиц с радиусом $r = 2.5$ мкм при изменении их концентрации n от 10^3 до 10^5 см $^{-3}$, а давления P газа от 1 до 0.01 Торр получим следующий диапазон:

$$\xi = 0.02-4.2.$$

В соответствии с этим диапазоном варьировались параметры системы в нашем численном эксперименте ($\xi = 0.055, 0.166, 0.5, 1.5, 4.5$).

Для анализа формирования порядка в моделируемых системах использовались парная корреляционная функция $g(r)$ и структурный фактор $S(q)$. Зависимость величины первых максимумов для этих функций (g_1, S_1) и их положений ($r = d_{g_1}, q = d_{S_1}$) от величины Γ^* приведены на рис. 2а, б для различных параметров системы. Анализ результатов данных расчетов показывает, что нормированный параметр Γ^* полностью определяет корреляцию макрочастиц (возникновение как дальнего, так и ближнего порядков в пылевой системе) и может рассматриваться как параметр порядка для диссипативных систем Юкавы от $\Gamma^* < 1$ до точки ее кристаллизации. При увеличении параметра $\Gamma^* \rightarrow \Gamma_c^*$ формировалась объемно-центрированная кристаллическая структура. Положение первых максимумов функций g_1 и S_1 для кристаллической структуры соответствовало *bcc*-решетке ($d_{g_1} \approx r_1 = (3\sqrt{3}/4n)^{1/3}$, $d_{S_1} \approx q_1 = 2\pi(\sqrt{2}n)^{1/3}$, см. рис. 2б) [31, 32].

Отношения коэффициентов диффузии D заряженных частиц к коэффициенту диффузии $D_0 = T/\nu_{fr}m_p$ не взаимодействующих (броуновских) макрочастиц для различных значений κ и ξ приведены на рис. 3. Из рисунка видно, что

динамика сильно неидеальных систем ($\Gamma^* > 40$) определяется двумя основными параметрами, Γ^* и ξ , последний из которых может рассматриваться как параметр масштабирования для диссипативных жидкостных систем.

3. КОЭФФИЦИЕНТ ДИФФУЗИИ МАКРОЧАСТИЦ В СИЛЬНО КОРРЕЛИРОВАННЫХ ЖИДКОСТНЫХ СТРУКТУРАХ

Следует напомнить, что теория «скачков» дает вполне удовлетворительное описание для коэффициента диффузии $D_M(2)$ молекул в реальных жидкостях, а коэффициент диффузии D макрочастиц в сильно неидеальных системах Юкавы имеет экспоненциальную зависимость от параметра Γ^* [18]:

$$D \propto \exp(-c_1\Gamma^*/\Gamma_c^*).$$

Для иллюстрации на рис. 4 показаны зависимости D от Γ^* в логарифмическом масштабе. Легко увидеть, что кривые $D(\Gamma^*)$ в диапазоне Γ^* от 102 до 50 практически линейны и имеют одинаковый наклон ($c_1 \approx \text{const}$). Примем значение параметра Γ_c^* на линии кристаллизации соответствующим середине области резкого изменения коэффициента диффузии (рис. 3):

$$\Gamma_c^* \sim 104.5.$$

Тогда величина $c_1 \approx 3$ с точностью $\pm 3\%$ для всех параметров расчетов ξ и κ [18]. Иллюстрация «скачков», наблюдаемых в моделируемых системах Юкавы, представлена на рис. 5, где показана разница между усреднением системы по ансамблю

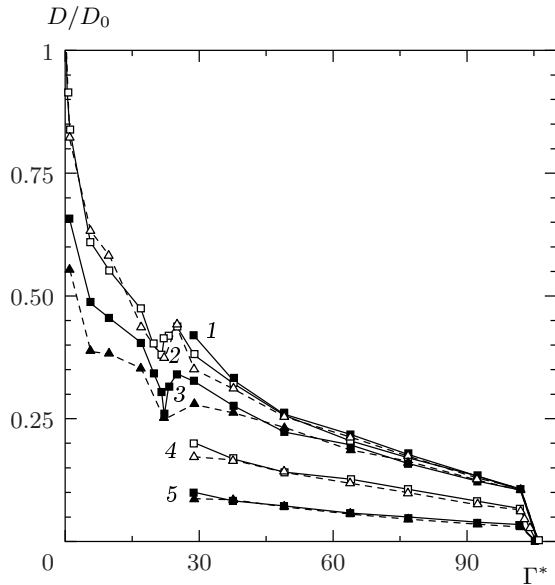


Рис. 3. Зависимости отношения коэффициентов D/D_0 от параметра Γ^* для различных $\kappa = 4.8$ (треугольники, штриховые линии); 2.4 (квадраты, сплошные линии) и $\xi = 0.055$ (1); 0.166 (2); 0.5 (3); 1.5 (4); 4.5 (5)

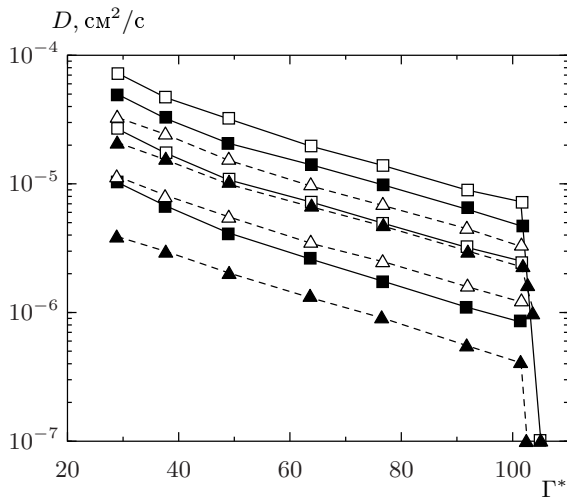


Рис. 4. Зависимости отношения коэффициентов диффузии D от параметра Γ^* для $\kappa = 2.4$ (треугольники) и 4.8 (квадраты)

$$\Delta_N = \sqrt{\frac{\langle (\mathbf{1}(t) - \mathbf{1}(0))_N^2 \rangle}{d^2}}$$

и по времени

$$\Delta_N^t = \sqrt{\frac{\langle (\mathbf{1}(t) - \mathbf{1}(0))_N^2 \rangle_t}{d^2}}$$

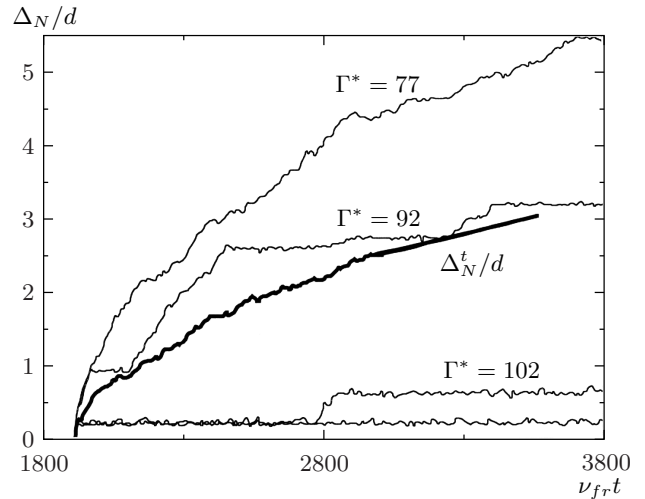


Рис. 5. Зависимости относительного среднеквадратичного смещения Δ_N/d от $\nu_{fr}t$ для ансамбля пылевых частиц с $\xi = 0.5$, $\kappa = 2.4$. Жирной линией показан случай усреднения величины Δ_N по времени (Δ_N^t) для $\Gamma^* = 92$

вблизи линии кристаллизации системы. С уменьшением параметра Γ^* эта разница исчезает, исследуемая система становится эргодической.

Таким образом, поиск простой эмпирической функции для величины коэффициента диффузии D взаимодействующих частиц может быть построен на выборе подходящего значения для характерного времени τ_0 соотношении (2). Предположим, что характерная частота ν_0 переходов между соседними седловыми состояниями определяется случайными столкновениями частиц между собой (с некоторой характерной частотой $\omega \approx c_2 \omega^*$, где $c_2 = \text{const}$) и с молекулами окружающего газа с частотой ν_{fr} . Предположим также, что величину $\tau_0 \approx 2/\nu_0$, можно записать в виде

$$\tau_0 = \frac{2(\omega + \nu_{fr})}{\omega^2},$$

поскольку частота ν_0 должна стремиться к ω при $\xi \ll 1$, и к ω^2/ν_{fr} для случая $\xi \gg 1$ [33]. Тогда неизвестный коэффициент c_2 можно найти путем наилучшего согласования с численными результатами, полученными методом броуновской динамики. Процедура минимизации среднеквадратичного отклонения между соотношением (2) и численными результатами в диапазоне Γ^* от 102.5 до 50 дает величину $c_2 \approx (\pi)^{-1/2}$. Тогда, принимая во внимание значения полученных коэффициентов (c_1, c_2) и преобразование

$$\Gamma^* = \frac{m_p(\omega^* d)^2}{T},$$

можно записать для коэффициента диффузии

$$D \approx \frac{T\Gamma^*}{12\pi(\pi^{-1/2}\omega^* + \nu_{fr})m_p} \exp\left(-3\frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*}\right). \quad (7)$$

Ошибка аппроксимации результатов расчета для коэффициентов диффузии формулой (7) не превышает 2.5% для Γ^* от 102.5 до 50. С уменьшением Γ^* до 40 ошибка возрастает до 7–13%, а для $\Gamma^* = 30$ составляет величину около 25–30%.

Отметим, что характерная частота столкновений между макрочастицами в жидкости $\omega_l = (\pi)^{-1/2}\omega^*$ может быть получена, если рассмотреть силу межчастичного взаимодействия в пылевой системе

$$F = (eZ)^2 \exp(-l/\lambda) \frac{1 + l/\lambda}{l^2},$$

считая электрические поля от всех частиц, кроме ближайших, полностью скомпенсированными [12]. Тогда величина ω_l будет определяться производной dF/dl в точке $l = d$ как

$$\omega_l^2 = 4n(eZ)^2 \exp(-\kappa) \frac{1 + \kappa + \kappa^2/2}{4\pi}.$$

Интересно, что колебания частиц с частотами близкими к $\omega_l = (\pi)^{-1/2}\omega^*$ можно обнаружить в движениях системы даже при достаточно высокой вязкости газа, где $\xi = 0.5$ (рис. 6). Исследование поведения этих колебаний не являлось целью данной работы, однако было замечено, что данные регулярные движения исчезают с уменьшением Γ^* .

Соотношение, аналогичное (7), можно получить, если предположить независимость и случайность столкновений между заряженными макрочастицами (ω) и между частицами и нейтралами окружающего газа (ν_{fr}), а также принять, что для исследуемой пылевой системы справедливо распределение Максвелла–Больцмана. Тогда динамические процессы в данной системе будут описываться уравнениями Ланжевена, которые путем несложных преобразований [32] можно представить в виде системы из N_1 уравнений для среднеквадратичных смещений частиц, находящихся в «оседлом» состоянии:

$$m_p \frac{d^2 x_i^2}{dt^2} = -m_p \nu_{fr} \frac{dx_i^2}{dt} - 2\omega_c^2 x_i^2 + 2m_p \left(\frac{dx_i}{dt}\right)^2 + 2x_i F_{Br}, \quad (8a)$$

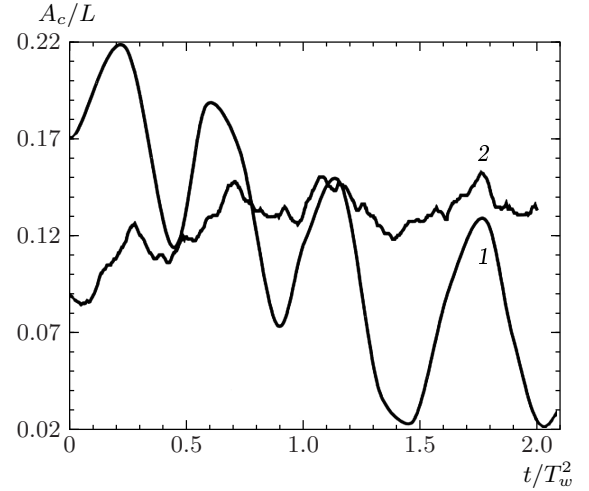


Рис. 6. Зависимости относительного смещения центра масс A_c/L (L — размер счетной ячейки) от отношения времени t к периоду колебаний $T_w = 2\pi/\omega_f$, где $\omega_f = \omega^*/\sqrt{\pi}$, для следующих значений параметров: 1 — $\xi = 1.5$, $\Gamma^* = 102$, $\kappa = 4.8$; 2 — $\xi = 0.5$, $\Gamma^* = 92$, $\kappa = 2.4$

и N_2 уравнений, которые описывают движение «свободных» пылевых частиц:

$$m_p \frac{d^2 x_j^2}{dt^2} = -m_p(\omega + \nu_{fr}) \frac{dx_j^2}{dt} + 2m_p \left(\frac{dx_j}{dt}\right)^2 + 2x_j(F_{Br} + F_\Sigma). \quad (8б)$$

Здесь

$$F_\Sigma \approx \frac{1}{\sqrt{3}} \left| \sum_j F_{int}(l) \Big|_{l=|l_k - l_j|} \frac{l_k - l_j}{|l_k - l_j|} \right|$$

— случайная сила толчков со стороны «свободных» пылевых частиц ($j = 1 - N_2$), ω_c — характерная частота колебаний «оседлых» частиц, а x описывает смещение частицы в выделенном направлении. Учитывая, что диффундируют только «свободные» частицы, решение системы (8а), (8б) при $t \rightarrow \infty$ дает для коэффициента диффузии выражение

$$D = \frac{\langle K_j \rangle N_2}{(\omega + \nu_{fr})m_p N_p},$$

где

$$\langle K_j \rangle = m_p \langle (dx_j/dt)^2 \rangle, \quad N_p = N_1 + N_2.$$

В случае $N_1 = 0$ и $\omega = 0$ данный коэффициент совпадает с коэффициентом диффузии броуновских частиц

$$D_0 = T/\nu_{fr}m_p.$$

Для случая $N_1 \ll N_2 \approx N$ закон сохранения энергии в системе (8а), (8б) дает следующее выражение [23, 32]:

$$D \approx \frac{W}{(\omega + \nu_{fr})m_p} \exp\left(-\frac{W}{T}\right). \quad (9)$$

где W — энергия, характеризующая переход частиц из «оседлого» в «свободное» состояние. Далее, полагая $W/T = c\Gamma^*$ (где $c = \text{const}$) и учитывая, что полная энергия «оседлой» частицы в точке кристаллизации рассматриваемой системы не может превышать энергию идеального трехмерного осциллятора $E = 3T$, получим, что коэффициент $c = 3/\Gamma_c^*$, а коэффициент диффузии равен

$$D \approx \frac{3}{\Gamma_c^*} \frac{T\Gamma^*}{(\omega + \nu_{fr})m_p} \exp\left(-3\frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*}\right). \quad (10)$$

Данное соотношение аналогично выражению (7), поэтому коэффициенты, стоящие в этих выражениях перед экспонентой, должны быть близки. Если принять $\omega \approx \omega^*(\pi)^{-1/2}$, то величина параметра неидеальности в точке кристаллизации может быть получена из совместного решения (7) и (10):

$$\Gamma_c^* = 36\pi \approx 110,$$

что с точностью около 5% согласуется с величиной 104.5, найденной по «скачку» коэффициента диффузии.

В заключение данного раздела приведем два простых соотношения для коэффициента диффузии D в двух предельных случаях:

$$D \approx \begin{cases} \frac{d}{12} \sqrt{\frac{T\Gamma^*}{\pi m_p}} \exp\left(-3\frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*}\right), & \omega \gg \nu_{fr}, \quad (11a) \\ D_0 \frac{\Gamma^*}{12\pi} \exp\left(-3\frac{\Gamma^*}{\Gamma_c^*}\right), & \omega \ll \nu_{fr}. \quad (11б) \end{cases}$$

Данные соотношения позволяют достаточно легко определять модифицированный параметр Γ^* по результатам измерений среднего межчастичного расстояния, температуры и диффузии частиц в жидкостных системах и могут быть полезны для экспериментального анализа таких параметров частиц, как заряд и радиус экранирования.

4. КРИТЕРИИ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ

4.1. Плавление трехмерной кристаллической решетки

Существуют различные феноменологические критерии кристаллизации системы взаимодействующих частиц, нашедшие свое применение в физике

пылевой плазмы. Наиболее известен критерий Линдемана [34], согласно которому твердая фаза плавится, если отношение корня среднеквадратичного смещения

$$\Delta_0 = \sqrt{\langle(\mathbf{l} - \mathbf{l}_0)^2\rangle}$$

частицы от ее положения равновесия \mathbf{l}_0 к среднему межчастичному расстоянию $d = n^{-1/3}$ достигает величины порядка 0.15. Отметим, что в процессе численных экспериментов обычно измеряется смещение частицы относительно центра масс системы $\Delta = \sqrt{2}\Delta_0$, откуда, следуя критерию, отношение Δ/d на линии плавления должно быть порядка 0.21. Величина $\Delta/d \sim 0.2-0.25$ для большинства твердых тел в точке плавления [35]. Однако, согласно результатам численного моделирования, выполняемого различными авторами, данная величина изменяется от 0.16–19 в случае плавления *fcc*-решетки до 0.18–0.2 для *bcc*-структур. Для всех случаев, рассмотренных в данной работе, кристаллизация наблюдалась при $\Delta/d \rightarrow 0.19-0.2$ (рис. 4). Данное обстоятельство может быть связано с недостаточным числом N_p частиц в моделируемых системах, поскольку $\Delta/d \rightarrow 0.2$ с увеличением N_p при таянии решеток обоих типов [15].

Другой известный критерий, предложенный Хансеном, определяет значение первого максимума S_1 для жидкостного структурного фактора [36] как величину меньше 2.85 (это число также изменяется от 2.5 до 3.2 в различных расчетах). Изменение величины S_1 от 2.65 до 3.1 при переходе системы из жидкого в кристаллическое состояние наблюдалось и в наших расчетах (см. рис. 2а). В качестве простого критерия кристаллизации в терминах бинарной корреляционной функции рассматривается равенство 0.2 для отношения ее минимального и максимального значений. Следует отметить, что для системы с конечным числом частиц два последних критерия сильно зависят от процедуры определения структурного фактора и парной корреляционной функции, соответственно. Кроме того, вблизи точек кристаллизации системы или других фазовых переходов флуктуации корреляций между частицами бесконечно возрастают [37]. Поэтому расчеты характеристик для ограниченной пылевой системы могут оказаться некорректными на линиях фазовых изменений.

В качестве простого критерия для фазового перехода жидкость–*bcc*-структура может быть рассмотрено условие постоянства величины модифицированного параметра неидеальности Γ^* на линии плавления системы. Как уже было сказано выше, можно

определить значение параметра Γ^* на линии между плавлением и кристаллизацией структуры как $\Gamma_c^* \approx 104.5$. Данное значение соответствует середине интервала $\Gamma^* = 102-107$, где отношение коэффициентов D/D_0 уменьшается более чем на два порядка (рис. 3) и происходят резкие изменения величин первых максимумов парной корреляционной функции и структурного фактора (рис. 2а). Подчеркнем, что величина $\Gamma_c^* \approx 104.5$ ($\pm 2\%$) практически не зависит от вязкости окружающего газа, поэтому данный критерий находится в согласии с результатами расчетов кристаллизации систем Юкавы методами молекулярной динамики, не учитывающих трение частиц [13–17]. Отклонения результатов этих расчетов от значения $\Gamma_c^* \approx 104.5$ варьируются в пределах $\pm 5\%$ [12] и могут быть связаны с различием в численных методах, используемых для анализа системы (выбором разного числа частиц, шага интегрирования и т. д.), а также выбором величины Γ либо в точке плавления, либо в точке кристаллизации системы. Следует отметить, что полученная величина $\Gamma_c^* \approx 104.5$ ($\pm 2\%$) находится в согласии с результатами теоретической работы [19], где для параметра неидеальности на линии фазового перехода в кулоновских системах приводится значение $105(\pm 3\%)$, которое удовлетворяет расчетам в рамках различных критериев фазовых переходов жидкость–кристалл (кристаллизация) [20] и кристалл–жидкость (плавление) [21].

Простой динамический критерий плавления был получен в работе [38] для условий коллоидных растворов, который определяет отношение коэффициентов диффузии пылевой частицы D/D_0 на линии фазового перехода жидкость–кристалл как величину близкую к 0.1. На несоответствие этого результата применительно к пылевой плазме газовых разрядов, где вязкость газа может быть недостаточно велика, было указано в работе [12]. Действительно, используя (11а), получим $D/D_0 \approx 0.13$ для $\Gamma^* = \Gamma_c^* \approx 104.5$ при $\nu_{fr} \gg \omega$. С увеличением ξ (уменьшением ν_{fr} , см. рис. 3) величина D/D_0 будет уменьшаться, причем обратно пропорционально ν_{fr} при $\nu_{fr} \rightarrow 0$, где величина коэффициента D практически не зависит от вязкости окружающего газа (11б). Добавим также, что если следовать выводам предыдущего раздела, то отношение D/D_0 на линии кристаллизации должно зависеть от размерности решетки.

Условие, аналогичное критерию Линдемана, может быть получено, если принять во внимание, что объем тепловых флуктуаций

$$V_{tf} \sim 4\pi/3\Delta^3$$

для *bcc*-решетки не должен превышать величины

$$\left(1 - \pi\sqrt{2}/8\right)V \approx 0.32V,$$

где

$$V = n^{-1} \equiv \frac{4\pi}{3} a_{WZ}^3,$$

$a_{WZ} = (4\pi n/3)^{-1/3}$ — радиус ячейки Вигнера–Зейтца. Для устойчивого существования *fcc*-структуры необходимо, чтобы

$$V_{tf} < \left(1 - \pi\sqrt{2}/6\right)V \approx 0.26V$$

(см. [27, 31]). Учтем возможность встречного смещения частиц и примем $\Delta = \sqrt{2}\Delta_0$ (где Δ — наиболее вероятная величина смещения). Откуда получим, что величина Δ/d , необходимая для разрушения *bcc*-структуры должна быть выше 0.211 ($\Delta_0/d > 0.15$), и с точностью до 7% равна величине $\Delta \sim 0.198$ на линии плавления *fcc*-решетки ($\Delta_0/d \approx 0.14$). Этот результат прекрасно согласуется с результатами, представленными в работе [15], и со всеми дальнейшими оценками, приведенными в настоящей работе (см. таблицу).

Значения параметров Γ_c^* и Δ на линии плавления кристаллических решеток позволяют оценить величину характерной частоты колебаний частиц ω_c в пылевом кристалле, определение которой является предметом ряда теоретических работ [13, 22, 27]. Для идеального гармонического осциллятора

$$\Delta_0^2 = 3T/m_p\omega_c^2, \quad (12)$$

где ω_c — характерная частота колебаний. Откуда, выражая T через ω^* и Γ^* , найдем

$$\omega_c = \omega^*(\Gamma^*\Delta_0^2/3d^2)^{-1/2}.$$

(Следует отметить, что соотношение (12) является решением системы (8а), (8б) для случая $N_1 = 0$.) Принимая $\Gamma^* = 104.5$, а $\Delta_0/d = 0.15$, получим (с точностью до 1.5%) для характерной частоты колебаний частиц в *bcc*-решетке $\omega_c = \omega_{bcc}$ частоту, значение которой в два раза выше, чем значение частоты, найденное для жидкостного случая:

$$\omega_{bcc}^2 \approx 4n_p(eZ)^2 \exp(-\kappa) \frac{1 + \kappa + \kappa^2/2}{\pi}.$$

Аналогичное значение для ω_{bcc} может быть получено другим путем, если предположить, что величина Δ на линии плавления кристаллической решетки должна быть близка к средней длине свободного пробега l_{p-p} частицы в жидкой фазе, $l_{p-p} \approx (6D\tau_0)^{1/2}$, где характерное время

Значение δ_c отношения наиболее вероятного смещения Δ к среднему межчастичному расстоянию d , величина параметра неидеальности $\Gamma_c = (eZ)^2 n^{1/3} / T$ на линии различных фазовых переходов в системах Юкавы и коэффициенты C_w для аппроксимаций $\omega_c^2 = C_w n (eZ)^2 \exp(-\kappa)$ характерных частот ω_c колебаний макрочастиц в bcc - и fcc -решетках ($\alpha = (4\pi/3)^{-1/3}$, $\kappa = d/\lambda$)

Фазовый переход	$\delta_c = \Delta/d \equiv \sqrt{2} \Delta_0/d$	$\Gamma_c = C_p (K_n \exp(-\kappa))^{-1}$		C_w
		C_p	K_n	
$bcc \rightarrow$ жидкость	$\frac{(1 - \pi\sqrt{2}/8)^{1/3}}{2\alpha} \sim 0.211$	$\frac{6}{4\pi^{-1}\delta_c^2} \sim 106$	$1 + \kappa + \kappa^2/2$	$\frac{4}{\pi} \left(1 + \kappa + \frac{\kappa^2}{2}\right)$
$bcc \rightarrow fcc$	$\frac{(1 - \pi\sqrt{2}/6)^{1/3}}{\sqrt{2}\alpha\kappa} (\kappa - \alpha) \sim$	$\frac{6}{4\pi^{-1}0.27^2} \sim 64$	$\frac{(1 + \kappa + \kappa^2/2)(\kappa - \alpha)^2}{\kappa^2}$	
$fcc \rightarrow bcc$	$\sim \frac{0.27(\kappa - \alpha)}{\kappa}$	$6/2\alpha^3 0.27^2 \sim 9.8$	$\frac{(\kappa - \alpha)^3}{\kappa^2}$	$2\alpha^3(\kappa - \alpha)$
$fcc \rightarrow$ жидкость	$\frac{(1 - \pi\sqrt{2}/6)^{1/3}}{2\alpha} \sim 0.198$	$6/2\alpha^3 \delta_c^2 \sim 18.5$	$\kappa - \alpha$	

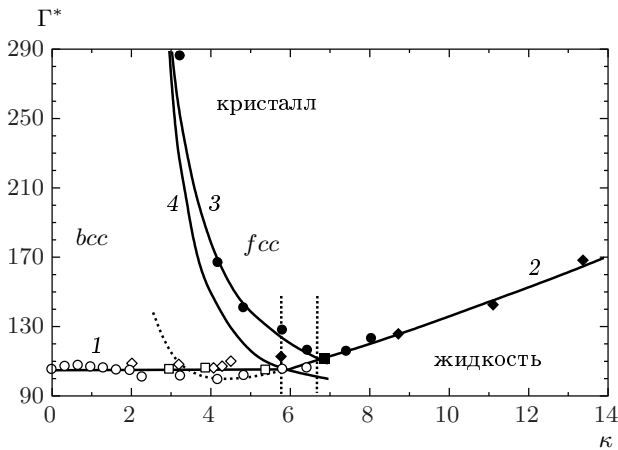


Рис. 7. Зависимости Γ^* от κ для различных фазовых переходов: кружки — [16]; квадраты — [15]; ромбы — [14] (темные символы соответствуют формированию fcc -решетки); 1 — $\Gamma^* = 106$ ($bcc \rightarrow$ жидкость); 2 — $fcc \rightarrow$ жидкость (13); 3 — $bcc \rightarrow fcc$ (15); 4 — $fcc \rightarrow bcc$ (16)

$\tau_0 = 2(\omega + \nu_{fr})/\omega^2$ было введено ранее. Заметим, что отношение l_{p-p}/d на линии кристаллизации жидкости действительно соответствует величине 0.2.

Исходя из сказанного выше и учитывая, что отношение $\Delta_0/d \approx 0.14$, характерную частоту колебаний частиц в fcc -решетке можно было бы оценить, как

$$\omega_{fcc} \approx 0.15\omega_{bcc}/0.14.$$

Тогда значение величины Γ^* на линии кристаллизации решеток обоих типов должно было бы оставаться постоянным, что не согласуется с результатами численного моделирования (см. рис. 7). Это связано с тем, что с ростом κ влияние ближайших соседей на поведение отдельной частицы уменьшается по отношению к влиянию остальных частиц системы. В предположении однородности суммирование сил межчастичного взаимодействия от каждой частицы с точностью до некоторой постоянной величины дает

$$F_\Sigma = \alpha^3 n_p (eZ)^2 \exp(-l/\lambda) \lambda \{1 + l/\lambda - \alpha\},$$

где $\alpha = (4\pi/3)^{-1/3} \approx 1.612$. Отсюда для частоты, характерной для fcc -структуры, может быть получено выражение

$$\omega_{fcc}^2 = 2\alpha^3 n_p (eZ)^2 \exp(-\kappa) (\kappa - \alpha).$$

Полагая отношение $\Delta_0/d \approx 0.14$ на линии плавления fcc -решетки, из (12) можно определить критическую величину Γ_c (см. таблицу) или параметр Γ_c^* для данного фазового перехода:

$$\Gamma_c^* \approx 18.5(\kappa - \alpha)^{-1} (1 + \kappa + \kappa^2/2). \quad (13)$$

Применение нормированной величины Γ_c^* (13) позволяет иллюстрировать ход кривых плавления fcc -структура–жидкость и bcc -структура–жидкость в близком (не логарифмическом) масштабе (рис. 7). Расхождение между критерием (13) и различными

результатами моделирования [14–16] фазового перехода fcc -структура–жидкость не превышает 2% для $\kappa > 6.8$. В области значений κ между 5.8 и 6.8 находится тройная точка системы (bcc – fcc –жидкость), анализ поведения системы вблизи которой будет представлен ниже совместно с анализом влияния радиуса экранировки λ на процессы формирования fcc -решетки для $\kappa < 6.8$. Добавим также, что в области значений κ от 3 до 7 полученная частота ω_{bcc} соответствует величине $0.15\omega_{bcc}/0.14$ с точностью до $\pm 5\%$, что нашло свое отражение в результатах расчетов значений Γ_c^* (см. рис. 7).

4.2. Фазовый переход между bcc - и fcc -структурами

Наиболее полные данные для фазовой диаграммы перехода системы Юкавы из bcc - в fcc -структуру были представлены в работе [16] (см. рис. 1 и 7). Критерий для этого перехода может быть получен, если принять во внимание, что для изменения bcc -симметрии решетки необходимо, чтобы расстояния между частицами в системе были больше радиуса их экранировки λ . Только при этом условии межчастичное взаимодействие будет близко к взаимодействию «твердых шаров», когда возможно образование fcc -структуры. Тогда, учитывая средний объем тепловых флуктуаций

$$V_{if} < \left(1 - \pi/3\sqrt{2}\right) V$$

и возможность встречного смещения частиц (см. разд. 4.1.), получим следующее условие для перехода системы из bcc - в fcc -структуру:

$$2 \left(1 - \pi/3\sqrt{2}\right)^{-1/3} \Delta_0 < a_{WZ} - \lambda. \quad (14)$$

Значения отношения Δ_0/d для различных фазовых переходов представлены в таблице и на рис. 8, где можно увидеть, что интервал значений κ между 5.8 и 6.8 определяет область тройного фазового перехода (bcc -структура– fcc -структура–жидкость).

Условие (14) можно преобразовать в условие для параметра неидеальности Γ_c (см. таблицу) или для модифицированного параметра Γ^* при помощи соотношения (12):

$$\Delta_0^2 = \frac{3\Gamma}{m_p\omega_c^2} \equiv \frac{3\pi}{4\Gamma^*},$$

где для bcc -решетки полагаем

$$\omega_c^2 = 4n_p(eZ)^2 \exp(-\kappa) \frac{1 + \kappa + \kappa^2/2}{\pi}.$$

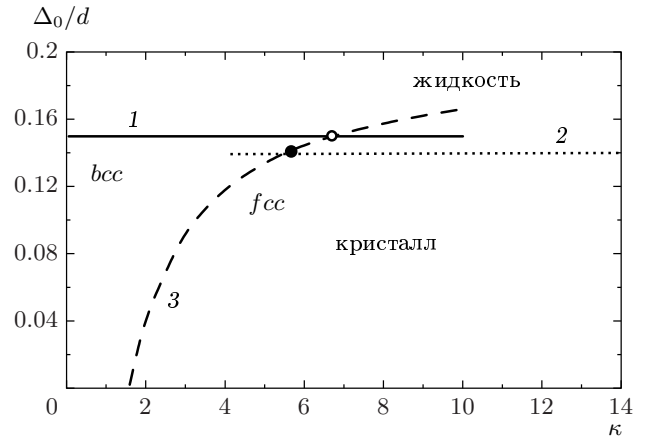


Рис. 8. Зависимости Δ_0/d от κ для различных фазовых переходов: 1 — $bcc \rightarrow$ жидкость; 2 — $fcc \rightarrow$ жидкость; 3 — $bcc \leftrightarrow fcc$; \circ — $\kappa = 5.8$; \bullet — $\kappa = 6.8$

Откуда, подставляя численные значения коэффициентов, получим

$$\Gamma^* \approx 64\kappa^2(\kappa - \alpha)^{-2}. \quad (15)$$

Применимость условия (15) в качестве критерия для bcc – fcc -перехода была проверена для данных работы [16]. Проверка показала, что отклонение рассчитанных величин Γ^* для bcc – fcc -перехода от соотношения (15) находится в пределах $\pm 2\%$. Иллюстрация приведена на рис. 7 (кривая 3). Учитывая, что возможность обратного перехода из fcc - в bcc -структуру будет определяться частотой

$$\omega_{fcc}^2 = 2\alpha^3 n_p (eZ)^2 \exp(-\kappa)(\kappa - \alpha),$$

в качестве критерия для данного превращения можно рассмотреть соотношение

$$\Gamma^* \approx 9.8\kappa^2(\kappa - \alpha)^{-3}(1 + \kappa + \kappa^2/2). \quad (16)$$

Следует отметить, что условие (16) зависит от корректности аппроксимации частоты ω_{fcc} и может быть ошибочным для малых значений $\kappa \rightarrow \alpha$. Тем не менее результаты расчета по формулам (15), (16) (кривые 3, 4, рис. 7) полностью определяют область тройного фазового перехода ($\kappa = 5.8$ – 6.8) и согласуются с результатами, полученными для значений отношения Δ_0/d (см. рис. 8). Добавим также, что различие в положении кривых, определяемых формулами (15), (16), способно объяснить расхождения результатов численного моделирования при определении местоположения тройной точки у различных авторов [14–16].

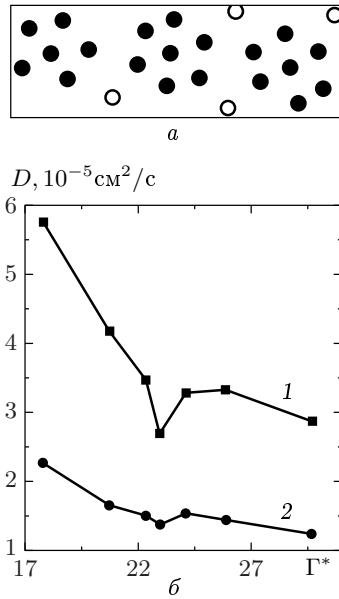


Рис. 9. Конденсация пылевых кластеров (а) и скачки коэффициентов диффузии D (б) в зависимости от параметра Γ^* для $\kappa = 2.4$ и различных значений параметра $\xi = 0.5$ (1) и 0.166 (2)

4.3. Конденсация макрочастиц

Остановимся на качественном анализе наблюдения конденсации макрочастиц (роста пылевых кластеров, см. рис. 9а), когда параметр Γ^* принимает значения около 23.5. Формирование групп отдельных макрочастиц нашло свое отражение в изменении положения максимума парной корреляционной функции (рис. 2б) и в скачкообразном уменьшении коэффициента диффузии (см. рис. 3 и 9б). Напомним, что для $\Gamma^* < 40$ моделируемая система уже не описывается простыми соотношениями (7)–(11), которые были получены в рамках теории «скачков» для молекулярных жидкостей, и параметр масштабирования ξ (5) не подходит для анализа динамики макрочастиц.

Можно предположить, что наблюдаемое явление представляет собой фазовый переход (второго рода) системы из сильно коррелированной жидкости в неидеальный газ. Некоторая несостоятельность данного предположения определяется двумя причинами, первая из которых — это то, что в критической области $\Gamma^* \sim 23.5$ коэффициент диффузии не стремится к нулю. Данное обстоятельство может быть связано с уже упомянутыми конечными размерами счетной ячейки, которая препятствует дальнейшему росту пылевых кластеров. Похожие эффекты наблюдались в работе [39]. Вторая причина заключает-

ся в том, что в системе (3) силы притяжения между частицами в явном виде не задавались.

Наблюдаемое явление может быть связано с симметрией потенциала межчастичного взаимодействия (аналогично конденсации Бозе–Эйнштейна, возникающей из-за симметрии волновой функции [35]). Тогда значение $\Gamma^* \approx 23.5$ должно определять такие условия, при которых в системе начинают проявляться свойства, обусловленные тождественностью ее частиц. Действительно, если положить среднюю длину свободного пробега частицы в жидкой фазе $l_{p-p} = (6D\tau_0)^{1/2}$ равной радиусу ячейки Вигнера–Зейтца a_{WZ} , то для критического параметра Γ^* мы получим величину около 26, что с точностью применения формулы (7) для области $\Gamma^* < 40$ совпадает с $\Gamma^* \approx 23.5$.

В заключение следует отметить, что в отличие от конденсации Бозе–Эйнштейна, которая происходит в пространстве импульсов, конденсация пылевых частиц наблюдается в координатном пространстве, аналогично явлениям реальных фазовых переходов из газа в жидкость. Таким образом, на настоящий момент остается неясным, является наблюдаемое явление фазовым переходом или нет. Тем не менее совершенно очевидно, что моделируемая система в точке $\Gamma^* \approx 23.5$ качественно изменяет свои динамические характеристики (рис. 3).

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе исследовалась динамика заряженных макрочастиц в широком диапазоне температур при параметрах, близких к условиям экспериментов в лабораторной слабоионизированной пылевой плазме. Рассмотрены существующие и предложены новые феноменологические критерии для различных фазовых переходов (см. таблицу). Определен параметр порядка для систем Юкавы, и параметр, отвечающий за масштабирование динамических процессов в диссипативной системе сильно взаимодействующих макрочастиц. Получено соотношение для коэффициента диффузии D пылевых частиц в жидкостных структурах. Данные результаты могут быть использованы для пассивной диагностики (не требующей внешнего вмешательства в систему) динамических характеристик жидкостных пылевых структур и анализа таких параметров системы, как параметр неидеальности, радиус экранирования и заряд макрочастиц.

Данная работа была выполнена при частичной поддержке РФФИ (проекты 01-02-16658 и 00-02-17520) и CRDF (проект RP2-2250).

ЛИТЕРАТУРА

1. J. H. Chu and L. I, Phys. Rev. Lett. **72**, 4009 (1994).
2. H. Thomas, G. E. Morfill, V. Demmel et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 652 (1994).
3. A. Melzer, T. Trottenberg, and A. Piel, Phys. Lett. A **191**, 301 (1994).
4. В. Е. Фортов, А. П. Нефедов, В. М. Торчинский и др., Письма в ЖЭТФ **64**, 86 (1996).
5. А. М. Липаев, В. И. Молотков, А. П. Нефедов и др., ЖЭТФ **112**, 2030 (1997).
6. D. A. Low, W. H. Steel, B. M. Annaratone et al., Phys. Rev. Lett. **80**, 4189 (1998).
7. G. Morfill, H. Thomas, U. Konopka et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 1598 (1999).
8. S. Nunomura, T. Misawa, N. Ohno, and S. Takamura, Phys. Rev. Lett. **83**, 1970 (1999).
9. O. Vaulina, S. Khrapak, A. Nefedov et al., Phys. Rev. E **60**, 5959 (1999).
10. О. С. Ваулина, А. П. Нефедов, О. Ф. Петров и др., ЖЭТФ **115**, 2067 (2000).
11. R. T. Farouki and S. Hamaguchi, Appl. Phys. Lett. **61**, 2973 (1992).
12. О. С. Ваулина, С. А. Храпак, ЖЭТФ **117**, 326 (2000).
13. M. O. Robbins, K. Kremer, and G. S. Grest, J. Chem. Phys. **88**, 3286 (1988).
14. E. J. Meijer and D. Frenkel, J. Chem. Phys. **94**, 2269 (1991).
15. M. J. Stevens and M. O. Robbins, J. Chem. Phys. **98**, 2319 (1993).
16. S. Hamaguchi, R. T. Farouki, and D. N. E. Dubin, Phys. Rev. E **56**, 4671 (1997).
17. H. Totsuji, T. Kishimoto, Y. Inoue et al., Phys. Lett. A **221**, 215 (1996).
18. О. С. Ваулина, С. А. Храпак, ЖЭТФ **119**, 264 (2001).
19. W. L. Slattery, G. D. Doollen, and H. E. DeWitt, Phys. Rev. A **21**, 2087 (1980).
20. E. L. Plooloc and J. P. Hansen, Phys. Rev. A **8**, 3110 (1973).
21. H. M. Van Horn, Phys. Lett. A **28**, 707 (1969).
22. H. Ohta and S. Hamaguchi, Phys. of Plasma **7**, 4506 (2000).
23. Я. И. Френкель, *Кинетическая теория жидкостей*, Ленинград (1975).
24. Г. Л. Свинни, в сб. *Спектроскопия оптического смешения и корреляция фотонов*, под ред. Г. Каммингса, Э. Пайка, Мир, Москва (1978), с. 332.
25. Г. З. Камминс, там же, с. 287.
26. П. Н. Пьюзи, там же, с. 387.
27. J. M. A. Hofman, Y. J. H. Clercx, and P. P. J. Schram, Phys. Rev. E **62**, 8212 (2000).
28. А. А. Овчинников, С. Ф. Тимашев, А. А. Белый, *Кинетика диффузионно-контролируемых химических процессов*, Химия, Москва (1986).
29. I. T. Yakubov and A. G. Khrapak, Sov. Tech. Rev. B. Therm. Phys. **2**, 269 (1989).
30. J. Goree, Plasma Sources Sci. Technol. **3**, 400 (1994).
31. О. С. Ваулина, О. Ф. Петров, М. В. Таранин, Физика плазмы **25**, 281 (1999).
32. Д. В. Сивухин, *Курс общей физики*, Наука, Москва (1979), т. 2, с. 509.
33. В. Е. Фортов, А. П. Нефедов, О. С. Ваулина и др., ЖЭТФ **114**, 2004 (1998).
34. F. A. Lindemann, Z. Phys. **11**, 609 (1910).
35. Физическая энциклопедия, Изд-во Большая Российская энциклопедия, Москва (1998), т. 1, с. 574, 219, 366.
36. J. P. Hansen and L. Verlet, Phys. Rev. **184**, 151 (1969).
37. Г. Стенли, *Фазовые переходы и критические явления*, Мир, Москва (1973).
38. H. Lowen, T. Palberg, and R. Simon, Phys. Rev. Lett. **70**, 1557 (1993).
39. T. Maekawa, K. Ishii, and S. Masuda, J. Jap. Soc. Microgravity Appl. **15**, 130 (1998).